

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平7-330315

(43)公開日 平成7年(1995)12月19日

(51)Int.Cl.⁶

C 01 B 21/072

C 04 B 35/626

35/581

識別記号 庁内整理番号

B

F I

技術表示箇所

C 04 B 35/ 58

1 0 4 R

1 0 4 D

審査請求 未請求 請求項の数2 OL (全5頁)

(21)出願番号

特願平6-126503

(22)出願日

平成6年(1994)6月8日

(71)出願人 000003296

電気化学工業株式会社

東京都千代田区有楽町1丁目4番1号

(72)発明者 寺野 克典

福岡県大牟田市新開町1 電気化学工業株式会社大牟田工場内

(72)発明者 中村 美幸

福岡県大牟田市新開町1 電気化学工業株式会社大牟田工場内

(72)発明者 内野 紘一

福岡県大牟田市新開町1 電気化学工業株式会社大牟田工場内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 窒化アルミニウム粉末及び窒化アルミニウム焼結体の製造法

(57)【要約】

窒化アルミニウム粉末及び窒化アルミニウム焼結体の製造法

【目的】 高密度かつ高熱伝導であり、しかも収縮とそのバラツキの小さな窒化アルミニウム焼結体を製造することのできる窒化アルミニウム粉末を提供すること。

【構成】 金属アルミニウムを直接窒化して得られたものであって、粒度構成が累積10体積%粒径0.45～0.60μm、累積50体積%粒径4～5μm、累積90体積%粒径1.3～1.6μmでしかも粒径2.63μm以下の粒子35～45体積%であり、酸素量が0.6～1.0重量%であることを特徴とする窒化アルミニウム粉末、及びこの窒化アルミニウム粉末とイットリウム又はイットリウム化合物を含む成形体を非酸化性雰囲気下で焼成することを特徴とする窒化アルミニウム焼結体の製造法。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属アルミニウムを直接窒化して得られたものであって、粒度構成が累積10体積%粒径0.45～0.60μm、累積50体積%粒径4～5μm、累積90体積%粒径1.3～1.6μmでしかも粒径2.63μm以下の粒子35～45体積%であり、酸素量が0.6～1.0重量%であることを特徴とする窒化アルミニウム粉末。

【請求項2】 請求項1記載の窒化アルミニウム粉末とイットリウム又はイットリウム化合物を含む成形体を非酸化性雰囲気下で焼成することを特徴とする窒化アルミニウム焼結体の製造法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、窒化アルミニウム粉末及び窒化アルミニウム焼結体の製造法に関する。

【0002】

【従来の技術】 近年、ロボット・モーター等の産業機器の高性能化に伴い、大電力・高効率インバーター等大電力モジュールの変遷が進んでおり、半導体素子から発生する熱も増加の一途をたどっている。この熱を効率よく放散させるため、パワーモジュール用回路基板では従来より様々な方法がとられてきた。特に最近、優れた熱伝導性と電気絶縁性を有しある熱膨張係数がシリコンのそれに近い窒化アルミニウムが注目され、パワーモジュール用回路基板のセラミックス基板として利用されている。

【0003】 このような窒化アルミニウム基板においては、その表面に銅板を接合してから化学エッチング法により銅回路が形成され、そのままあるいはメッキ等の処理を施してから半導体素子が実装される。銅回路を形成させた反対面には放熱フィンを取り付けるための銅製放熱板が接合される構造もある。

【0004】 従来、この種の窒化アルミニウム基板を製造するための窒化アルミニウム粉末としては、アルミナ還元法又は金属アルミニウム直接窒化法によって得られたものが一般的であるが、これらには一長一短がある。アルミナ還元法窒化アルミニウム粉末は、金属アルミニウム直接窒化法のものに比べて粒径が揃っているので焼結しやすくまた高熱伝導性のものが得られやすいが、焼成時の収縮が大きくしかもそれが炉内雰囲気によって変わり易いので規格寸法の厳格なこの種の用途のために、製法と取扱において格段の注意が必要であった。また、この窒化アルミニウム粉末は高価である。

【0005】 一方、金属アルミニウム直接窒化法によれば、製造が容易で安価な窒化アルミニウム粉末を得ることができると、焼成時の収縮はアルミナ還元法窒化アルミニウム粉末ほどではないにしてもそれがあり、また熱伝導性も高くないという問題がある。

【0006】 本発明は、上記問題を解消することを目的

10

とするものであり、熱伝導性と焼成時の収縮を更に改善することのできる金属アルミニウム直接窒化法による窒化アルミニウム粉末及びそれを用いた窒化アルミニウム焼結体の製造法を提供するものである。

【0007】 すなわち、本発明は、金属アルミニウムを直接窒化して得られたものであって、粒度構成が累積10体積%粒径0.45～0.60μm、累積50体積%粒径4～5μm、累積90体積%粒径1.3～1.6μmでしかも粒径2.63μm以下の粒子35～45体積%であり、酸素量が0.6～1.0重量%であることを特徴とする窒化アルミニウム粉末、及びこの窒化アルミニウム粉末とイットリウム又はイットリウム化合物を含む成形体を非酸化性雰囲気下で焼成することを特徴とする窒化アルミニウム焼結体の製造法である。

【0008】 以下、更に詳しく本発明を説明する。

【0009】 本発明者らは、熱伝導率が120W/mK以上でしかも焼成時の収縮とそのバラツキの小さい窒化アルミニウム焼結体を製造するための金属アルミニウム直接窒化法による窒化アルミニウム粉末の粒度構成と酸素量について種々検討したところ、金属アルミニウムを直接窒化して製造された窒化アルミニウムインゴットを粉碎して窒化アルミニウム粉末とする際、その粉碎時間を長くして微粉を多くすると焼結性はよくなるが酸素量が増大して熱伝導率が低下し、逆に粗粉を多くすると焼結性が低下して熱伝導率も小さくなるのでその低下を焼成温度の増大によって阻止しようとすると焼成時の収縮が大きくなることを見いだした。

【0010】 そこで、熱伝導性と焼成時の収縮をバランスさせるべき窒化アルミニウム粉末の粒度構成と酸素量について更に検討を進めた結果、上記のように限定したものである。

【0011】 本発明の窒化アルミニウム粉末は、粒度構成と酸素量の異なる2種又は3種以上の窒化アルミニウム粉末を準備し、それらを適切量配合することによっても得ることができるが、窒化アルミニウムインゴットの粉碎を以下のようにすることによって製造することができる。

【0012】 まず、窒化アルミニウムインゴットは、粒径2.50μm以下の金属アルミニウム粉末又は金属アルミニウムと窒化アルミニウムとの混合粉末を窒素とアンモニアを含む雰囲気中、窒素分圧0.75以下、温度600～1100℃間ににおける窒化反応を1.5kcal/mol·Hr以下に制御しながら1400℃程度まで昇温し窒化させることによって製造することができる。この詳細については、特開昭62-56310号公報に記載されている。

【0013】 得られた窒化アルミニウムインゴットは、ロールクラッシャー等で1mm以下程度に粗粉碎し、次いでその粗粉碎物を振動ミルとボールミルとの組合せ粉碎を行うことによって本発明の窒化アルミニウム粉末を

20

30

40

50

製造することができる。

【0014】すなわち、本発明においては、粗粉碎物を球状の粉碎媒体を用いた通常のボールミルによる粉碎では微粉が多く生成するので適当ではないので、まず線接触により粉碎可能となるシリンダー状の粉碎媒体を用いた振動ミルで5～20時間程度粉碎して最大粒径30μm以下とし、次いで適切量の微粉をつくるために純度98重量%程度の高純度アルミナボールを用いたボールミルで5～12時間程度の粉碎を行う。

【0015】本発明の窒化アルミニウム粉末の粒度構成は、レーザー回折法によって測定されたものであり、その市販測定機器のほとんどは累積体積10% (D P 10)、50% (D P 50) 及び90% (D P 90) の値と2.63μm以下の粒子の割合を測定することができるるので、本発明においても便宜の点からそれらにおける値で特定した。

【0016】窒化アルミニウム粉末の酸素量の調整は、その粉碎雰囲気の酸素量を調節することによって行うことができる。窒化アルミニウムインゴットの酸素量は通常0.5重量%以下である。

【0017】次に、本発明の窒化アルミニウム焼結体の製造法について説明する。本発明で使用される焼結助剤は、イットリウム又はイットリウムの酸化物、フッ化物、塩化物、硝酸塩、硫酸塩等であるが、特にイットリアが最適である。焼結助剤の使用量は窒化アルミニウム粉末100部（部は重量部。以下同じ）に対し1～5部が好ましい。

【0018】窒化アルミニウム粉末と焼結助剤を含む成形物例えばシート成形を行うためのスラリーは、窒化アルミニウム粉末と焼結助剤の合計100部に対し、有機結合剤3～12部、可塑剤1～10部、分散剤1～3部、溶剤10～40部を配合しボールミルで混合することによって調製することができる。

【0019】有機結合剤としてはポリビニルブチラール、ポリビニルアルコール、アクリルポリマー等、可塑剤としてはジブチルフタレート、ジオクチルフタレート等、分散剤としてはグリセリントリオレート等の脂肪酸エステル等、また溶剤としてはトルエン、キシレン、イソプロパノール等のアルコール系、ケトン系、芳香族系、パラフィン系、塩素系等が使用できる。

【0020】シート成形方法としては、ドクターブレード法が好適であるがこれに限られることはなくカレンダーロール法や押出し成形法を採用することもできる。成形にあたっては、前工程として真空脱泡を行い粘度調整を行うことが好ましい。

【0021】上記のようにして成形されたシートはプレス装置にて所定形状に打ち抜かれ、脱脂後焼成される。脱脂条件は、通常は窒素及び/又は空気中で行われ、温度は900℃以下特に空気を含む雰囲気では600℃以下である。焼成は、窒素、アルゴン等の非酸化性雰囲気

下、温度1800～2000℃程度で行われる。

【0022】本発明によって得られた窒化アルミニウム焼結体の一用途としては、パワーモジュール用回路基板がある。これは、厚み0.3～0.8mm程度の窒化アルミニウム基板の一方の面に銅回路を形成し、その反対面には通常は銅製放熱板が形成されるが何も形成させない構造のものもある。

【0023】窒化アルミニウム基板に銅回路又は銅製放熱板を形成させるための銅板の接合法としては活性金属ろう付け法が好ましく、また銅板から銅回路又は銅製放熱板を形成するには化学エッチング法が採用される。活性金属ろう付け法におけるろう材の金属成分としては、銀と銅を主成分とし、溶融時の窒化アルミニウム基板との濡れ性を確保するために活性金属を副成分とする。活性金属の具体例をあげれば、チタン、ジルコニア、ハフニウム、ニオブ、タンタル、バナジウム及びそれらの化合物である。これらの割合としては、銀69～75部と銅25～31部の合計量100部あたり活性金属3～35部である。

【実施例】以下、実施例により本発明をさらに具体的に説明する。

【0025】実施例1

粒径250μm以下、純度99.5重量%の金属アルミニウム粉末を窒素分圧0.4とした窒素とアンモニアの混合雰囲気下において、温度600℃までの昇温速度を50℃/時、600～1100℃の間を5℃/時、1100～1350℃の間を40℃/時として昇温しその温度で3時間保持して窒化を行った。

【0026】得られた窒化アルミニウムインゴットをロールクラッシャーで1mm以下に粗粉碎し、次いでその粗粉碎物を純度99%のアルミナ製シリンダー状粉碎媒体を用いた振動ミルで6時間粉碎後、更に純度99%のアルミナ製ボールを用いたボールミルで5時間粉碎して窒化アルミニウム粉末を製造し、粒度構成と酸素量を以下に従って測定した。その結果を表1に示す。

【0027】窒化アルミニウム粉末95部、イットリア5部、ポリビニルブチラール8部、ジブチルフタレート4部、グリセリントリオレート1部、トルエン35部、イソプロパノール15部をジルコニア製の容器とボールを使用したボールミルで24時間混合した。得られたスラリーを脱泡槽で粘度を15000cpsに調整してからドクターブレード装置により厚み0.75mmのグリーンシートを成形した。

【0028】このグリーンシートを60mm×35mmの大きさに打ち抜き、シート表面にBN粉を塗布したものを5枚重ねて脱脂炉に入れ、温度500℃の空气中で5時間保持して脱脂を行った。次いで、常圧窒素雰囲気中、温度1850℃で45分間焼成を行った後、温度1700℃までの冷却速度を1.5℃/分として室温まで

冷却した。得られた窒化アルミニウム焼結体は、51m \times 34mm \times 厚み0.64mmの寸法であり、以下に従って測定された密度、熱伝導率及び収縮率は表1のとおりであった。

【0029】(1) 粒度 (n=5の平均) : レーザー回折法、N&L製「マイクロトラックSPA-7997」による。

(2) 酸素量 (n=5の平均) : LECO社製「TC-136型」O/N同時分析計による。

(3) 密度 (n=5の平均) : アルキメデス法による。

(4) 熱伝導率 (n=5の平均) : 真空理工社製「TC-3000」による。

(5) 収縮率 (ロット数5 n=20の平均) : ノギスによりグリーンシートと窒化アルミニウム焼結体の外寸を測定し、収縮率(%) = (グリーンシートの外寸 - 窒化アルミニウム焼結体の外寸) × 100 / (グリーンシートの外寸)により算出した。

【0030】実施例2

振動ミルによる粉碎時間を8時間、ポールミルの粉碎時間を6時間としたこと以外は、実施例1と同様にして窒化アルミニウム粉末を製造した。得られた窒化アルミニウム粉末の粒度構成のグラフを図1に示す。

【0031】実施例3

振動ミルによる粉碎時間を15時間、ポールミルの粉碎時間を10時間としたこと以外は、実施例1と同様にし*

*で窒化アルミニウム粉末を製造した。

【0032】比較例1

振動ミルによる粉碎時間を2時間、ポールミルの粉碎時間を4時間としたこと以外は、実施例1と同様にして窒化アルミニウム粉末を製造した。

【0033】比較例2

振動ミルによる粉碎時間を25時間、ポールミルの粉碎時間を14時間としたこと以外は、実施例1と同様にして窒化アルミニウム粉末を製造した。

【0034】比較例3

振動ミルによる粉碎時間を14時間、ポールミルの粉碎時間を14時間としたこと以外は、実施例1と同様にして窒化アルミニウム粉末を製造した。

【0035】比較例4

振動ミルによる粉碎時間を4時間、ポールミルの粉碎時間を18時間としたこと以外は、実施例1と同様にして窒化アルミニウム粉末を製造した。

【0036】比較例5

振動ミルによる粉碎時間を0時間、ポールミルの粉碎時間を15時間としたこと以外は、実施例1と同様にして窒化アルミニウム粉末を製造した。この例は従来法の典型例である。

【0037】

【表1】

		粒径 (μm)			2.63 μm 以下の粒子 (%)	酸素量 (%)	密度 g/cm^3	熱伝導率 W/mK	収縮率 (%)	
		DP10	DP50	DP90					平均	標準偏差
実施例	1	0.6	4.9	15.8	36	0.6	3.30	156	14.89	0.008
	2	0.5	4.8	14.5	38	0.8	3.30	148	14.38	0.007
	3	0.45	4.1	13.3	43	1.0	3.30	143	14.09	0.007
比較例	1	0.8	7.5	17.2	30	0.5	2.93	80	16.67	0.010
	2	0.4	2.8	10.7	51	1.3	3.30	95	14.02	0.034
	3	0.5	3.6	13.9	48	1.1	3.30	88	14.11	0.025
	4	0.6	4.9	17.2	30	0.6	2.97	85	15.74	0.051
	5	0.35	2.6	13.9	54	1.4	3.30	76	14.00	0.044

【0038】

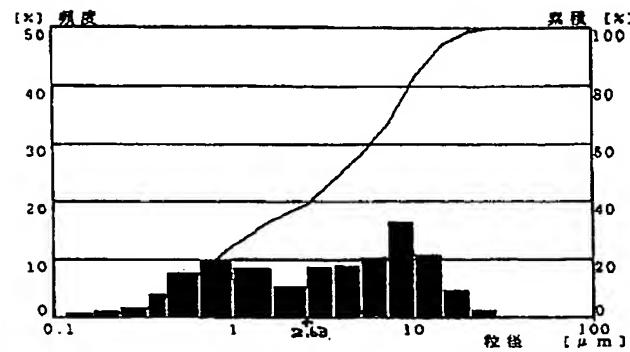
【発明の効果】本発明によれば、密度3.0 g/cm^3 以上かつ熱伝導率120 W/mK 以上であり、しかも収縮率が15%以下でそのバラツキの小さな窒化アルミニウム焼結体を製造することのできる窒化アルミニウム粉※

※末が提供される。

【図面の簡単な説明】

【図1】実施例2で製造された窒化アルミニウム粉末の粒度構成を示すグラフである。

【図1】



フロントページの続き

(72)発明者 宮井 明

福岡県大牟田市新開町1 電気化学工業株
式会社大牟田工場内